

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-089225
(43)Date of publication of 03.04.2001
application :

(51)Int.CI. C04B 35/10
C04B 35/626
C04B 35/622

(21)Application 2000-217024 (71)Applicant SUMITOMO CHEM CO LTD
number : ant :
(22)Date of 18.07.2000 (72)Inventor TAMURA YASUAKI
filing : or : MURAKAMI IWAO
TAKEUCHI YOSHIAKI

(30)Priority

y
Priority 112046 Priority 19.07.1 Priority JP
number : 90 y date : 999 country :

(54) PRODUCTION OF YTTRIUM-ALUMINUM-GARNET SINTERED COMPACT AND ITS
STARTING MATERIAL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To produce a powder, granules, a slurry or a
molding for a sintered compact capable of giving a high density YAG
sintered compact without using α -aluminum oxide as a starting material
or carrying out a calcining step.

SOLUTION: Yttrium oxide or its precursor and aluminum oxide other than
 α -aluminum oxide or its precursor are mixed in an yttrium to aluminum
atomic ratio of 3:4.7 to 3:5.2 under the condition of 3-50 G impulse.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]
[Date of sending the examiner's
decision of rejection]
[Kind of final disposal of
application other than the
examiner's decision of rejection or
application converted registration]
[Date of final disposal for
application]
[Patent number]
[Date of registration]
[Number of appeal against
examiner's decision of rejection]
[Date of requesting appeal against
examiner's decision of rejection]
[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

BEST AVAILABLE COPY

* NOTICES *

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2. **** shows the word which can not be translated.

3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The manufacture approach of the powder for yttrium aluminum garnet sintered compacts characterized by mixing the aluminum oxide except the aluminum oxide of yttrium oxide or its precursor, and alpha mold, or its precursor under the conditions of impact resistance values 3G-50G so that it may be set to 3 / 4.7 - 3/5.2 by the atomic ratio of an yttrium and aluminum.

[Claim 2] The manufacture approach of the granulation for yttrium aluminum garnet sintered compacts characterized by corning the powder obtained by the approach according to claim 1.

[Claim 3] The manufacture approach of the slurry for yttrium aluminum garnet sintered compacts characterized by mixing the powder obtained by the approach according to claim 1, and a dispersion medium.

[Claim 4] The manufacture approach of the Plastic solid for yttrium aluminum garnet sintered compacts characterized by fabricating the powder obtained by the approach according to claim 1.

[Claim 5] The manufacture approach of the yttrium aluminum garnet sintered compact characterized by sintering at 1500 degrees C - 1850 degrees C after fabricating the powder obtained by the approach according to claim 1.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2. **** shows the word which can not be translated.

3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the manufacture approach of the powder used for the manufacture approach of an yttrium aluminum garnet sintered compact, and it, granulation, a slurry, or a Plastic solid. It is related with the approach of manufacturing the approach of manufacturing, the granulation using the powder, a slurry, or a Plastic solid further, without passing the method of manufacturing a precise yttrium aluminum garnet sintered compact in a detail, therefore the powder to be used through a temporary-quenching process.

[0002]

[Description of the Prior Art] Conventionally, development has been furthered for the purpose of the ceramics with which the high density sintered compact of the yttrium aluminum garnet ("YAG" is called hereafter.) shown with empirical formula $Y_3\text{Aluminum}_5\text{O}_{12}$ has the translucency of an alternative of the Nd dope YAG single crystal for laser, the tube for halogen lamps, etc. since the crystal form is a cubic and grain boundary dispersion cannot take place easily. Moreover, in recent years, the application as a corrosion-resistant member to the plasma of the halogen system corrosive gas ambient atmosphere in semiconductor fabrication machines and equipment is spreading (for example, JP,10-236871,A). For this application, although especially translucency is not required, the high-density YAG sintered compact is called for cheaply.

[0003] Various kinds of approaches are proposed as the manufacture approach of the powder for sintered compacts that a high-density YAG sintered compact applicable to a corrosion-resistant member application can be offered.

[0004] For example, the approach of carrying out temporary quenching of this mixture at about 1500 degrees C, after mixing an aluminum oxide with yttrium oxide, After carrying out spray drying of the mixed water solution of yttrium sulfate and an aluminum sulfate, the approach (G.de.With others --) of carrying out temporary quenching of this dry matter at about 1300 degrees C Mat.Res.Bull.Vol.19 and p.1669 (1984), The water solution containing an yttrium and aluminum Under sulfate ion existence, How to carry out temporary quenching of this dry matter, after neutralizing, washing the obtained precipitate and drying with a urea (the patent No. 2796632 official report), After mixing the solution and aluminum-hydroxide powder of an yttrium compound like a yttrium chloride, neutralizing this mixture and making precipitate generate, temporary quenching of the obtained precipitate is carried out, and there is the approach (JP,8-183613,A) of grinding this temporary-quenching article.

[0005] However, by these approaches, there is a process which carries out temporary quenching of the aluminum-yttrium content matter, and, for that purpose, temporary-quenching equipment is needed with an elevated temperature 1000 degrees C or more. Moreover, there was an inclination for the energy expenditure for the powder manufacture for sintered compacts to increase.

[0006] On the other hand, the method of obtaining the powder for YAG sintered compacts is proposed, without performing temporary quenching. For example, there is the approach (JP,3-218963,A) of carrying out wet blending of the yttrium oxide powder of true-density 5.03 g/cm³ and

the aluminum oxide dust of 99 % of the weight or more of purity and true-density 3.99 g/cm³.

[0007] The aluminum oxide of this true-density 3.99 g/cm³ is an aluminum oxide of alpha mold, and it is usually obtained by calcinating an aluminum hydroxide at an elevated temperature 1200 degrees C or more. In order to use for an approach given in this official report the aluminum oxide of alpha mold calcinated at such an elevated temperature as a manufacture raw material of the powder for sintered compacts, it had the problem to which the preparation cost of a raw material becomes high. Moreover, since wet blending with the yttrium oxide using the aluminum oxide of such an alpha mold took long duration, productivity was not enough.

[0008] [Problem(s) to be Solved by the Invention] The technical problem of this invention is to offer without a temporary-quenching process the manufacture approach of the powder for sintered compacts that the YAG sintered compact of high density can be given, and offer the manufacture approach of the granulation for considering as a YAG sintered compact using it, a slurry, or a Plastic solid further, without using the aluminum oxide of alpha mold as a raw material. Moreover, other technical problems of this invention are to offer the approach of manufacturing the YAG sintered compact of high density, using these raw materials.

[0009] this invention person etc. came to complete this invention, as a result of considering wholeheartedly the manufacture approach of the powder suitable for a YAG sintered compact application.

[0010] [Means for Solving the Problem] That is, the manufacture approach of the powder for YAG sintered compacts characterized by mixing the aluminum oxide except the aluminum oxide of the 1st yttrium oxide or its precursor, and alpha mold of this invention or its precursor under the conditions of impact resistance values 3G-50G so that it may be set to 3 / 4.7 - 3/5.2 by the atomic ratio of an yttrium and aluminum is offered.

[0011] The 2nd of this invention offers the manufacture approach of the granulation for YAG sintered compacts characterized by corning the powder obtained by the 1st approach of the above.

[0012] The 3rd of this invention offers the manufacture approach of the slurry for YAG sintered compacts characterized by mixing the powder obtained by the 1st approach of the above, and a dispersion medium.

[0013] The 4th of this invention offers the manufacture approach of the Plastic solid for YAG sintered compacts characterized by fabricating the powder obtained by the 1st approach of the above.

[0014] The 5th of this invention offers the manufacture approach of the YAG sintered compact characterized by sintering at 1500 degrees C - 1850 degrees C, after fabricating the powder obtained by the 1st approach of the above. According to this approach, high density (the ratio of the sintered density to 3 is expressed the theoretical density of 4.55g/cm of a YAG sintered compact.), for example, relative density, can manufacture 98% or more of YAG sintered compact.

[0015] [Embodiment of the Invention] Hereafter, this invention is explained to a detail. In this invention, yttrium oxide or its precursor, an aluminum oxide, or its precursor is used as a raw material of YAG. the compound which serves as a yttrium oxide precursor here with yttrium oxide when it calcinates among air at 1500-degree-C or more temperature of 1850 degrees C or less -- it is -- for example, a nitriding yttrium, an acid nitriding yttrium, a hydroxylation yttrium, a carbonization yttrium, a yttrium chloride, an oxysalt-ized yttrium, a fluoridation yttrium, and bromination -- an yttrium, a sulfuration yttrium, an oxalic acid yttrium, a carbonic acid yttrium, yttrium acetate, a stearin acid yttrium, a lactic-acid yttrium, a lauric-acid yttrium, etc. are included. The number of yttrium oxide or its precursors may be one, and two or more sorts may be mixed and they may

be used. Moreover, as for the yttrium oxide used here or its precursor, what has high purity is desirable, for example, what has 99 % of the weight or more and 99.9 more% of the weight or more of purity is desirable. In addition, it can ask for the purity of a yttrium oxide precursor by measuring $2OY_3$ content of the yttrium oxide which calcinates the precursor at the inside of air, and 1500-degree-C or more temperature of 1850 degrees C or less, and is obtained.

[0016] Such yttrium oxide or its precursor is mixed with an aluminum oxide or its precursor. When using an aluminum oxide, they are things other than alpha mold, for example, are called intermediate alumina or a transition alumina, and the aluminum oxide which has the crystal structure of gamma, delta, theta, rho, chi, kappa mold, etc. is mentioned. Moreover, among air, an aluminum-oxide precursor is a compound used as an aluminum oxide, when it calcinates at 1500-degree-C or more temperature of 1850 degrees C or less, for example, aluminium nitride, acid aluminium nitride, an aluminum hydroxide, aluminium carbide, an aluminium chloride, oxysalt-ized aluminum, aluminum fluoride, the aluminium bromide, oxalic acid aluminum, an aluminum sulfate, aluminium acetate, aluminum stearate, ammonium alum, lactic-acid aluminum, lauric-acid aluminum, etc. are included. The number of an aluminum oxide or its precursors may be one, and two or more sorts may be mixed and they may be used. Especially, it is obtained with the hydrolyzing method or a Bayer process of an alkoxide etc., and is obtained by the aluminum hydroxide and division which have the crystal structure of pseudo-boehmite, boehmite, gibbsite, and bayerite, and hydrolysis of an alkoxide, and application of the aluminium hydroxide whose crystal structure is pseudo-boehmite is recommended. According to the approach of hydrolyzing an alkoxide, the aluminum hydroxide of a high grade can be obtained. As for an aluminum oxide or its precursor, what has high purity is desirable, for example, what has 99 % of the weight or more and 99.9 more% of the weight or more of purity is desirable. In addition, it can ask for the purity of an aluminum-oxide precursor by measuring $2Oaluminum_3$ content of the aluminum oxide which calcinates the precursor at the inside of air, and 1500-degree-C or more temperature of 1850 degrees C or less, and is obtained.

[0017] As for mixing with yttrium oxide or its precursor, an aluminum oxide, or its precursor, it is desirable for it to be carried out in the range in which the atomic ratio of an yttrium and aluminum becomes $3 / 4.7 - 3/5.2$, and to carry out further in the range in which this atomic ratio becomes $3 / 4.8 - 3/5.07$. If the atomic ratio of aluminum to an yttrium is small and the rate of the aluminum in mixture decreases, manufacture of the powder which can obtain the sintered compact which consists of a YAG single phase becomes difficult, and an yttrium-aluminum-perovskite phase comes to be intermingled in a sintered compact. On the other hand, the atomic ratio of aluminum to an yttrium is large, also when the rate of the aluminum in mixture increases, manufacture of the powder which can obtain the sintered compact which consists of a YAG single phase becomes difficult, and the alumina phase of alpha mold comes to be intermingled in a sintered compact. If a mixed rate with yttrium oxide or its precursor, an aluminum oxide, or its precursor separates from the range shown in the top, even if it mixes on the conditions from which the impact resistance value they-mentioned later is set to 3G-50G even if, manufacture of the powder which can obtain a YAG sintered compact with high sintered density will become difficult. Moreover, as for the YAG sintered compact obtained from the powder for sintered compacts prepared at a rate of separating from this range, corrosion resistance may fall.

[0018] In this invention, yttrium oxide or its precursor, an aluminum oxide, or its precursor is mixed again on condition that impact resistance values 3G-50G. Here, an impact resistance value means the acceleration which joins the mixture of yttrium oxide or its precursor and an aluminum oxide, or its precursor, it expresses with the multiple of the standard acceleration ($9.8ms^{-2}$) of free fall, and G is

used as a unit. The powder for YAG sintered compacts which can attain 98% or more of relative density as the impact resistance value at the time of mixing is less than [3G] cannot be obtained. When an impact resistance value exceeds 50G, the corrosion resistance of about [that the powder for YAG sintered compacts which can attain 98% or more of relative density is not obtained], and a YAG sintered compact may fall. The contamination from grinding media and the mill member at the time of mixing is imagined to have influenced that fabricate the powder, and sintered density with the sufficient YAG sintered compact which calcinates further and is obtained is not shown, and required corrosion resistance is not shown when the impact resistance value at the time of mixing exceeds 50G. In addition, an impact resistance value can be adjusted by changing the rotational frequency of the motor of equipments, such as a vibration mill used for mixing of yttrium oxide, the precursor and an aluminum oxide, or its precursor, and the amplitude of a mill.

[0019] Mixing of yttrium oxide, the precursor and an aluminum oxide, or its precursor can be performed using the equipment of marketing like a vibration mill, a planetary mill, and a centrifugal mill by the approach of stirring mechanically yttrium oxide or its precursor, an aluminum oxide, or its precursor. Mixing may be performed by any wet [by dry type or water], 5 minutes or more, mixing time is 10 minutes or more, and less than 12 hours and less than 6 more hours are usually preferably suitable for it.

[0020] SiO_2 , ZrO_2 , HfO_2 , MgO which are known for mixing as sintering acid of YAG, CaO , SrO , CdO , R_2O_3 (R expresses rare earth elements.) Bi_2O_3 , FeO and Fe_2O_3 , Cr_2O_3 , NiO and Sc_2O_3 , In_2O_3 , Nb_2O_5 , ZnO , when an oxide like MnO , CoO , TiO_2 , and GeO_2 may be added and it calcinates in 1500-degree-C or more air 1850 degrees C or less, the precursor matter used as said oxide may be added. these oxides and precursor matter -- one sort -- or two or more sorts can be used, combining. The addition of sintering acid is an amount which usually becomes 1 or less % of the weight by oxide conversion to the YAG sintered compact obtained. When the oxide used as sintering acid and its precursor matter are contained in the yttrium oxide which is a raw material, its precursor, an aluminum oxide, or its precursor, it is desirable to carry out by adjusting suitably so that the total quantity of such sintering acid contained beforehand and the sintering acid added at the time of mixing may become 1 or less % of the weight by oxide conversion to the YAG sintered compact obtained.

[0021] In this way, by corning the powder obtained, the suitable granulation for manufacture of a YAG sintered compact can be manufactured. According to this approach, there is no generating of dust, and also when it excels in handling nature and manufactures a large-sized YAG sintered compact member, the granulation for sintered compacts which can be easily considered as a homogeneous and precise sintered compact is obtained.

[0022] A granulation can perform the slurry obtained in in the approach and the powder for YAG sintered compacts which supply for example, the powder for YAG sintered compacts to a dry type granulating machine like tumbling disk granulator, and perform it after distributing a distributed function like an ultrasonic disperser, a ball mill, and a medium agitation mill in a dispersion medium with the equipment which has by the approach of spraying with a spray granulating machine. It is desirable to be usually able to perform distribution of the latter approach as a dispersion medium using water, and to carry out by adding the organic binder or lubricant like a dispersant like a polycarboxylic acid salt and polyvinyl alcohol to a dispersion medium. By using an organic binder and lubricant, the mechanical strength of the Plastic solid which fabricates granulation and is acquired can be raised.

[0023] Moreover, the suitable slurry for manufacture of a YAG sintered compact can be manufactured by mixing a dispersion medium for the powder manufactured by the approach described previously. If the slurry obtained by this approach is applied to the shaping approach

like the slip cast, the Plastic solid of a complicated configuration can be acquired easily. Furthermore, if the Plastic solid is made to sinter, it is a complicated configuration and a YAG sintered compact with high sintered density can be obtained easily.

[0024] Mixing with the powder for YAG sintered compacts and a dispersion medium can be performed using the equipment of marketing like for example, an ultrasonic disperser, a ball mill, and a medium agitation mill. It is desirable to carry out by adding an organic binder and lubricant to a dispersion medium in mixing. By using an organic binder and lubricant, the reinforcement of the Plastic solid which fabricates a slurry by the slip cast and is acquired can be raised. Moreover, after manufacture of a slurry corning the powder for YAG sintered compacts and using it as granulation, it can also be performed by the approach of mixing the granulation obtained and a dispersion medium.

[0025] Furthermore, the suitable Plastic solid for manufacture of a YAG sintered compact can be manufactured by fabricating the powder, the granulation, or the slurry manufactured by the approach described previously. Shaping can be performed by various approaches like for example, a metal mold 1 shaft press, a hydrostatic-pressure press, the slip cast, extrusion molding, and injection molding, and it is more than 0.1 T/cm^2 (10MPa), and considering the miniaturization of shaping equipment, below 2 T/cm^2 (200MPa) is usually suitable for the moulding pressure at the time of a press.

[0026] In this invention, the YAG sintered compact which is the last specified substance is manufactured by sintering the powder for YAG sintered compacts mentioned above, granulation, or the mold goods from a slurry at 1500 degrees C - 1850 degrees C again. Manufacture of a sintered compact can be performed by the approach of usually holding the Plastic solid which was able to obtain the powder for YAG sintered compacts a metal mold 1 shaft press, a hydrostatic-pressure press, the slip cast, extrusion molding, or after carrying out injection molding at predetermined temperature using an electric furnace or a gas furnace. It becomes difficult to obtain the YAG sintered compact which has 98% or more of sintered density as relative density as sintering temperature is less than 1500 degrees C. On the other hand, if sintering temperature exceeds 1850 degrees C, it will become difficult to obtain the YAG sintered compact which a YAG sintered compact lifting-comes to be easy of abnormality grain growth, and has 98% or more of sintered density as relative density. As for sintering, it is desirable among an air ambient atmosphere to carry out on the conditions from which the holding time turns into less than 12 hours 30 minutes or more. In addition, it is also possible to perform shaping of the powder for YAG sintered compacts and sintering of a Plastic solid with the same equipment, and there are for example, hotpress equipment and hot isostatic press (referred to as HIP) equipment as equipment which can be used in this case.

[0027]

[Effect of the Invention] The powder for YAG sintered compacts which was explained in full detail above and which can attain 98% without a temporary-quenching process as relative density of a YAG sintered compact, without using the aluminum oxide of alpha mold as a raw material like according to the manufacture approach of the powder for YAG sintered compacts of this invention can be obtained easily. According to the manufacture approach of the granulation for YAG sintered compacts of this invention, there is no generating of dust, and also when it excels in handling nature and manufactures a large-sized YAG sintered compact member, the granulation suitable for the sintered compact application which can be easily considered as a homogeneous and precise sintered compact can be obtained. According to the manufacture approach of the slurry for YAG sintered compacts of this invention, the slurry suitable for slip shaping which can obtain the Plastic solid of a complicated configuration and a sintered compact easily can be obtained. According to the manufacture approach of the Plastic solid for YAG sintered compacts of this invention, the

Plastic solid which can attain 98% as relative density of a YAG sintered compact can be acquired.

[0028] Moreover, according to the manufacture approach of the sintered compact of this invention, the YAG sintered compact which has the sintered density of 98% or more of relative density can be obtained easily.

[0029]

[Example] Hereafter, although an example explains this invention to a detail further, an example does not show one embodiment of this invention and, thereby, this invention is not restrained.

As example 1 raw material, 99.9 % of the weight of purity, 21g of yttrium oxide which is the mean particle diameter of 4.7 micrometers and 99.99 % of the weight of purity obtained by the alkoxide hydrolyzing method, and 21g of aluminum hydroxides whose crystal structure is a pseudo-boehmite mold were taught to the vibration mill of content volume 3L, it blended dryly by impact resistance value 6G for 84 minutes, and the powder for YAG sintered compacts was obtained. The presentation of the aluminum hydroxide at this time and the mixture of yttrium oxide was 3/4.7 in the atomic ratio of an yttrium and aluminum. The powder for YAG sintered compacts obtained in the top was sintered in the 1680-degree C air ambient atmosphere for 5 hours, after fabricating subsequently with the hydrostatic-pressure press of moulding pressure 1.5 T/cm² (150MPa), the metal mold 1 shaft press of moulding pressure 0.3 T/cm² (30MPa), and, and the YAG sintered compact was obtained. Sintered density was 4.45 g/cm³ and this YAG sintered compact was 98% of relative density.

[0030] As example 2 raw material, 1.3kg of aluminum hydroxides 99.9 % of the weight of purity, 99.99 % of the weight of purity by 1.3kg of yttrium oxide which is the mean particle diameter of 5.1 micrometers, and the alkoxide hydrolyzing method, and whose crystal structure are pseudo-boehmite molds was taught to the vibration mill of content volume 50L, it blended dryly by impact resistance value 6G for 3 hours, and the powder for YAG sintered compacts was obtained. The presentation of the yttrium oxide at this time and the mixture of an aluminum hydroxide was 3/5.15 in the atomic ratio of an yttrium and aluminum. After having put 7.7g of polycarboxylic acid salts into the wet medium agitation mill, having stirred them as 0.5kg of powder for YAG sintered compacts obtained in the top, 5.5kg of water, and a dispersant, distributing the powder for YAG sintered compacts and slurring, polyvinyl alcohol was added 3% of the weight to the powder for YAG sintered compacts as an organic binder, the obtained slurry was sprayed with the spray granulating machine, and the granulation for YAG sintered compacts was obtained. The obtained granulation for YAG sintered compacts was sintered in the 1680-degree C air ambient atmosphere for 5 hours, after fabricating with the hydrostatic-pressure press of 2 (150MPa) the moulding pressure of 1.5T/cm² subsequently, the metal mold 1 shaft press of moulding pressure 0.3 T/cm² (30MPa), and, and the YAG sintered compact was obtained. Sintered density was 4.51 g/cm³ and this YAG sintered compact was 99% of relative density.

[0031] As example of comparison 1 raw material, 24g of aluminum oxides 99.9 % of the weight of purity, 32g of yttrium oxide which is the mean particle diameter of 4.7 micrometers and 99.99 % of the weight of purity, and whose crystal structure are alpha molds was taught to the vibration mill of content volume 3L, it blended dryly by impact resistance value 6G for 84 minutes, and the powder for YAG sintered compacts was obtained. The presentation in the yttrium oxide at this time and the mixture of an aluminum oxide was 3/5 in the atomic ratio of an yttrium and aluminum. The powder for YAG sintered compacts obtained in the top was sintered in the 1680-degree C air ambient atmosphere for 5 hours, after fabricating subsequently with the hydrostatic-pressure press of moulding pressure 1.5 T/cm² (150MPa), the metal mold 1 shaft press of moulding pressure 0.3 T/cm² (30MPa), and, and the YAG sintered compact was obtained. Sintered density was 4.28 g/cm³ and this YAG sintered compact was 94% of relative density.

[0032] After it put 1kg of aluminum oxides and 1.3kg of water which is alpha mold into the wet medium agitation mill, and 1.3kg of yttrium oxide which is the purity of 99.9 % of the weight and the mean particle diameter of 4.7 micrometers, 99.99 % of the weight of purity, and the crystal structure made it distribute and slurred as example of comparison 2 raw material, polyvinyl alcohol was added 3% of the weight to the sum total of an aluminum oxide and yttrium oxide as an organic binder, the obtained slurry was sprayed with the spray granulating machine, and the granulation for YAG sintered compacts be obtained. The presentation in the yttrium oxide at this time and the mixture of an aluminum oxide was 3/5 in the atomic ratio of an yttrium and aluminum. The obtained granulation for YAG sintered compacts was sintered in the 1680-degree C air ambient atmosphere for 5 hours, after fabricating with the hydrostatic-pressure press of 2 (150MPa) the moulding pressure of 1.5T/cm subsequently, the metal mold 1 shaft press of moulding pressure 0.3 T/cm² (30MPa), and, and the YAG sintered compact was obtained. Sintered density was 3.40 g/cm³ and this YAG sintered compact was 75% of relative density.

[0033] As example of comparison 3 raw material, 99.9 % of the weight of purity, 21g of yttrium oxide which is the mean particle diameter of 4.7 micrometers and 99.99 % of the weight of purity obtained by the alkoxide hydrolyzing method, and 21g of aluminum hydroxides whose crystal structure is a boehmite mold were taught to the tumbling mill of content volume 3L, it blended dryly by impact resistance value 1g for 24 hours, and the powder for YAG sintered compacts was obtained. The presentation in the yttrium oxide at this time and the mixture of an aluminum oxide was 3/4.7 in the atomic ratio of an yttrium and aluminum. The powder for YAG sintered compacts obtained in the top was sintered in the 1680-degree C air ambient atmosphere for 5 hours, after fabricating subsequently with the hydrostatic-pressure press of moulding pressure 1.5 T/cm² (150MPa), the metal mold 1 shaft press of moulding pressure 0.3 T/cm² (30MPa), and, and the YAG sintered compact was obtained. Sintered density was 4.13 g/cm³ and this YAG sintered compact was 91% of relative density.

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2001-89225
(P2001-89225A)

(43) 公開日 平成13年4月3日 (2001. 4. 3)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード* (参考)
C 0 4 B 35/10		C 0 4 B 35/10	Z
35/626		35/00	A
35/622			D

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 6 頁)

(21) 出願番号	特願2000-217024(P2000-217024)	(71) 出願人	000002093 住友化学工業株式会社 大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号
(22) 出願日	平成12年7月18日 (2000. 7. 18)	(72) 発明者	田村 泰章 愛媛県新居浜市惣開町5番1号 住友化学 工業株式会社内
(31) 優先権主張番号	特願平11-204690	(72) 発明者	村上 巖 愛媛県新居浜市惣開町5番1号 住友化学 工業株式会社内
(32) 優先日	平成11年7月19日 (1999. 7. 19)	(72) 発明者	竹内 美明 愛媛県新居浜市惣開町5番1号 住友化学 工業株式会社内
(33) 優先権主張国	日本 (J P)	(74) 代理人	100093285 弁理士 久保山 隆 (外2名)

(54) 【発明の名称】 イットリウム-アルミニウム-ガーネット焼結体およびその原料の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 原料として α 型の酸化アルミニウムを用いることなく、かつ仮焼工程なしに、高密度のYAG焼結体を与え得る焼結体用粉末、顆粒、スラリーまたは成形体の製造方法を提供する。

【解決手段】 酸化イットリウムまたはその前駆体と α 型の酸化アルミニウムを除く酸化アルミニウムまたはその前駆体とをイットリウムとアルミニウムの原子比で3/4、7~3/5、2となるように衝撃値3G~50Gの条件下で混合する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 酸化イットリウムまたはその前駆体と α 型の酸化アルミニウムを除く酸化アルミニウムまたはその前駆体とを、イットリウムとアルミニウムの原子比で3/4、7~3/5、2となるように、衝撃値3G~50Gの条件下で、混合することを特徴とするイットリウム-アルミニウム-ガーネット焼結体用粉末の製造方法。

【請求項2】 請求項1記載の方法により得られる粉末を造粒することを特徴とするイットリウム-アルミニウム-ガーネット焼結体用顆粒の製造方法。

【請求項3】 請求項1記載の方法により得られる粉末と分散媒とを混合することを特徴とするイットリウム-アルミニウム-ガーネット焼結体用スラリーの製造方法。

【請求項4】 請求項1記載の方法により得られる粉末を成形することを特徴とするイットリウム-アルミニウム-ガーネット焼結体用成形体の製造方法。

【請求項5】 請求項1記載の方法により得られる粉末を成形した後、1500℃~1850℃で焼結することを特徴とするイットリウム-アルミニウム-ガーネット焼結体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、イットリウム-アルミニウム-ガーネット焼結体の製造方法およびそれに用いる粉末、顆粒、スラリーまたは成形体の製造方法に関するものである。詳細には、緻密なイットリウム-アルミニウム-ガーネット焼結体を製造する方法、そのために用いる粉末を、仮焼工程を経ることなく、製造する方法、さらにはその粉末を用いる顆粒、スラリーまたは成形体を製造する方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】従来、組成式 $Y_3Al_5O_{12}$ で示されるイットリウム-アルミニウム-ガーネット（以下、「YAG」と称する。）の高密度焼結体は、その結晶形が立方晶であり、粒界散乱が起こりにくいことから、レーザー用NdドープYAG単結晶の代替やハロゲンランプ用チューブ等の透光性を有するセラミックスを目標に開発が進められてきた。また近年では、半導体製造装置におけるハロゲン系腐食性ガス雰囲気中のプラズマに対する耐食性部材としての用途が広がりつつある（例えば、特開平10-236871号公報）。この用途では、透光性は特に要求されないものの、安価であって、かつ高密度なYAG焼結体が求められている。

【0003】耐食性部材用途に適用できる高密度なYAG焼結体を提供し得る焼結体用粉末の製造方法として、各種の方法が提案されている。

【0004】例えば、酸化イットリウムと酸化アルミニウムを混合した後、この混合物を約1500℃で仮焼する方

法、硫酸イットリウムと硫酸アルミニウムとの混合水溶液をスプレー乾燥した後、この乾燥物を約1300℃で仮焼する方法（G. de. With 他、Mat. Res. Bull. Vol. 19, p.1669 (1984)）、イットリウムとアルミニウムとを含有する水溶液を硫酸イオン存在下、尿素で中和し、得られた沈殿物を洗浄、乾燥した後、この乾燥物を仮焼する方法（特許第2796632号公報）、塩化イットリウムのようなイットリウム化合物の溶液と水酸化アルミニウム粉末とを混合し、この混合物を中和して沈殿物を生成させた後、得られた沈殿物を仮焼し、この仮焼品を粉砕する方法（特開平8-183613号公報）がある。

【0005】しかし、これらの方法では、1000℃以上の高温で、アルミニウム-イットリウム含有物質を仮焼する工程があり、そのためには仮焼装置が必要となる。また、焼結体用粉末製造のためのエネルギー消費が多くなる傾向があった。

【0006】一方、仮焼を行うことなしにYAG焼結体用粉末を得る方法が提案されている。例えば、真密度5.03g/cm³の酸化イットリウム粉末と純度99重量%以上、真密度3.99g/cm³の酸化アルミニウム粉末とを湿式混合する方法（特開平3-218963号公報）がある。

【0007】この真密度3.99g/cm³の酸化アルミニウムとは、 α 型の酸化アルミニウムのことであり、通常、水酸化アルミニウムを1200℃以上の高温で焼成することによって得られるものである。この公報に記載の方法は、焼結体用粉末の製造原料として、このような高温で焼成した α 型の酸化アルミニウムを用いるため、原料の調製コストが高くなる問題があった。また、このような α 型の酸化アルミニウムを用いた酸化イットリウムとの湿式混合には長時間を要することから、生産性が十分ではなかった。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、原料として α 型の酸化アルミニウムを用いることなく、かつ仮焼工程なしに、高密度のYAG焼結体を与え得る焼結体用粉末の製造方法を提供し、さらにはそれを用いて、YAG焼結体とするための顆粒、スラリーまたは成形体の製造方法を提供することにある。また、本発明の他の課題は、これらの原料を用いて、高密度のYAG焼結体を製造する方法を提供することにある。

【0009】本発明者等は、YAG焼結体用途に適した粉末の製造方法について鋭意検討を行った結果、本発明を完成するに至った。

【0010】

【課題を解決するための手段】すなわち、本発明の第1は、酸化イットリウムまたはその前駆体と α 型の酸化アルミニウムを除く酸化アルミニウムまたはその前駆体とを、イットリウムとアルミニウムの原子比で3/4、7

～3/5. 2となるように、衝撃値3G～50Gの条件下で、混合することを特徴とするYAG焼結体用粉末の製造方法を提供するものである。

【0011】本発明の第2は、上記第1の方法により得られる粉末を造粒することを特徴とするYAG焼結体用顆粒の製造方法を提供するものである。

【0012】本発明の第3は、上記第1の方法により得られる粉末と分散媒とを混合することを特徴とするYAG焼結体用スラリーの製造方法を提供するものである。

【0013】本発明の第4は、上記第1の方法により得られる粉末を成形することを特徴とするYAG焼結体用成形体の製造方法を提供するものである。

【0014】本発明の第5は、上記第1の方法により得られる粉末を成形した後、1500℃～1850℃で焼結することを特徴とするYAG焼結体の製造方法を提供するものである。この方法によれば、高密度の、例えば、相対密度(YAG焼結体の理論密度4.55g/cm³に対する焼結密度の比率を表す。)が98%以上のYAG焼結体を製造することができる。

【0015】

【発明の実施の形態】以下、本発明を詳細に説明する。本発明では、YAGの原料として、酸化イットリウムまたはその前駆体と酸化アルミニウムまたはその前駆体を用いられる。ここでいう酸化イットリウム前駆体とは、空气中、1500℃以上1850℃以下の温度で焼成したときに酸化イットリウムとなる化合物であり、例えば、窒化イットリウム、酸窒化イットリウム、水酸化イットリウム、炭化イットリウム、塩化イットリウム、オキシ塩化イットリウム、弗化イットリウム、臭化イットリウム、硫化イットリウム、碲酸イットリウム、炭酸イットリウム、酢酸イットリウム、ステアリン酸イットリウム、乳酸イットリウム、ラウリン酸イットリウムなどが包含される。酸化イットリウムまたはその前駆体は、1種であってもよいし、2種以上混合して用いてもよい。また、ここで用いる酸化イットリウムまたはその前駆体は純度の高いものが好ましく、例えば99重量%以上、さらには99.9重量%以上の純度を有するものが好ましい。なお、酸化イットリウム前駆体の純度は、その前駆体を、空气中、1500℃以上1850℃以下の温度で焼成して得られる酸化イットリウムのY₂O₃含有量を測定することにより、求めることができる。

【0016】このような酸化イットリウムまたはその前駆体は、酸化アルミニウムまたはその前駆体と混合される。酸化アルミニウムを用いる場合、それはα型以外のものであり、例えば、中間アルミナまたは遷移アルミナと呼ばれ、γ、δ、θ、ρ、χ、κ型などの結晶構造を有する酸化アルミニウムが挙げられる。また酸化アルミニウム前駆体とは、空气中、1500℃以上1850℃以下の温度で焼成したときに酸化アルミニウムとなる化合物であり、例えば、窒化アルミニウム、酸窒化アルミニウ

ム、水酸化アルミニウム、炭化アルミニウム、塩化アルミニウム、オキシ塩化アルミニウム、弗化アルミニウム、臭化アルミニウム、碲酸アルミニウム、硫酸アルミニウム、酢酸アルミニウム、ステアリン酸アルミニウム、アンモニウム明礬、乳酸アルミニウム、ラウリン酸アルミニウムなどが包含される。酸化アルミニウムまたはその前駆体は、1種であってもよいし、2種以上混合して用いてもよい。中でも、アルコキシドの加水分解法またはバイヤー法等で得られ、擬ベーマイト、ベーマイト、ギブサイトおよびバイヤライトの結晶構造を有する水酸化アルミニウム、とりわけ、アルコキシドの加水分解で得られ、結晶構造が擬ベーマイトである水酸化アルミニウムの適用が推奨される。アルコキシドを加水分解する方法によれば、高純度の水酸化アルミニウムを得ることができる。酸化アルミニウムまたはその前駆体は、純度の高いものが好ましく、例えば99重量%以上、さらには99.9重量%以上の純度を有するものが好ましい。なお、酸化アルミニウム前駆体の純度は、その前駆体を、空气中、1500℃以上1850℃以下の温度で焼成して得られる酸化アルミニウムのAl₂O₃含有量を測定することにより、求めることができる。

【0017】酸化イットリウムまたはその前駆体と酸化アルミニウムまたはその前駆体との混合は、イットリウムとアルミニウムの原子比が3/4.7～3/5.2となる範囲で行われ、さらには、この原子比が3/4.8～3/5.07となる範囲で行うことが好ましい。イットリウムに対するアルミニウムの原子比が小さく、混合物中のアルミニウムの割合が少なくなると、YAG単一相からなる焼結体を得ることが可能な粉末の製造が困難となり、焼結体にはイットリウム-アルミニウム-ペロブスカイト相が混在するようになる。一方、イットリウムに対するアルミニウムの原子比が大きく、混合物中のアルミニウムの割合が多くなった場合も、YAG単一相からなる焼結体を得ることが可能な粉末の製造が困難となり、焼結体にはα型のアルミナ相が混在するようになる。酸化イットリウムまたはその前駆体と酸化アルミニウムまたはその前駆体との混合割合が上で示した範囲を外れると、たとえ、それら後述する衝撃値が3G～50Gとなる条件で混合しても、焼結密度の高いYAG焼結体を得ることが可能な粉末の製造が困難になる。また、この範囲を外れる割合で調製した焼結体用粉末から得られるYAG焼結体は、耐食性が低下する場合がある。

【0018】本発明においてはまた、酸化イットリウムまたはその前駆体と酸化アルミニウムまたはその前駆体とを、衝撃値3G～50Gの条件で混合する。ここで、衝撃値とは、酸化イットリウムまたはその前駆体および酸化アルミニウムまたはその前駆体の混合物に加わる加速度を意味し、自由落下の標準加速度(9.8m/s²)の倍数で表し、単位としてGを用いる。混合時の衝撃値が3G未満であると、相対密度98%以上を達成できるY

YAG焼結体用の粉末を得ることができない。衝撃値が50Gを超えると、相対密度98%以上を達成できるYAG焼結体用の粉末が得られないばかりか、YAG焼結体の耐食性が低下することがある。混合時の衝撃値が50Gを超えた場合に、その粉末を成形し、さらに焼成して得られるYAG焼結体が十分な焼結密度を示さず、また必要な耐食性を示さないのは、混合時の粉砕メディアやミル部材からの汚染が影響していると推察される。なお、衝撃値は、酸化イットリウムまたはその前駆体と酸化アルミニウムまたはその前駆体の混合に使用する振動ミル等の装置のモーターの回転数やミルの振幅を変えることによって、調整することができる。

【0019】酸化イットリウムまたはその前駆体と酸化アルミニウムまたはその前駆体の混合は、例えば、振動ミル、遊星ミル、遠心ミルのような市販の装置を用い、酸化イットリウムまたはその前駆体と酸化アルミニウムまたはその前駆体とを機械的に攪拌する方法で行うことができる。混合は、乾式または水等による湿式のいずれで行ってもよく、混合時間は、通常、5分以上、好ましくは10分以上であり、また12時間以内、さらには6時間以内が適当である。

【0020】混合では、YAGの焼結助剤として知られている SiO_2 、 ZrO_2 、 HfO_2 、 MgO 、 CaO 、 SrO 、 CdO 、 R_2O_3 (Rは希土類元素を表す。)、 Bi_2O_3 、 FeO 、 Fe_2O_3 、 Cr_2O_3 、 NiO 、 Sc_2O_3 、 In_2O_3 、 Nb_2O_3 、 Ta_2O_5 、 ZnO 、 MnO 、 CoO 、 TiO_2 、 GeO_2 のような酸化物を添加してもよく、また、1500℃以上1850℃以下の空气中で焼成したときに前記酸化物となる前駆体物質を添加してもよい。これらの酸化物や前駆体物質は1種または2種以上組合せて使用することができる。焼結助剤の添加量は、通常、得られるYAG焼結体に対し酸化物換算で1重量%以下となる量である。原料である酸化イットリウムもしくはその前駆体または酸化アルミニウムもしくはその前駆体に焼結助剤となる酸化物やその前駆体物質が含まれているときは、このような予め含まれている焼結助剤と混合時に添加する焼結助剤の合計量が、得られるYAG焼結体に対し酸化物換算で1重量%以下となるように、適宜調節して行うことが好ましい。

【0021】こうして得られる粉末を造粒することにより、YAG焼結体の製造に好適な顆粒を製造することができる。この方法によれば、粉塵の発生がなく、ハンドリング性に優れ、かつ大型のYAG焼結体部材を製造する場合にも容易に均質で緻密な焼結体とすることが可能な焼結体用顆粒が得られる。

【0022】造粒は、例えば、YAG焼結体用粉末を皿型造粒機のような乾式造粒機に供給して行う方法、YAG焼結体用粉末を分散媒中に、超音波分散機、ボールミル、媒体攪拌ミルのような分散機能を有する装置で分散させた後、得られるスラリーをスプレー造粒機で噴霧する方

法で行うことができる。後者の方法の分散は、通常、分散媒として水を使用して行うことができ、分散媒へ、ポリカルボン酸塩のような分散剤、ポリビニルアルコールのような有機バインダーまたは潤滑剤を添加して行うことが好ましい。有機バインダーや潤滑剤を使用することによって、顆粒を成形して得られる成形体の機械的強度を高めることができる。

【0023】また、先に述べた方法で製造された粉末を分散媒とを混合することにより、YAG焼結体の製造に好適なスラリーを製造することができる。この方法により得られるスラリーをスリップキャストのような成形方法に適用すれば、複雑な形状の成形体を容易に得ることができる。さらに、その成形体を焼結させれば、複雑な形状で、かつ焼結密度が高いYAG焼結体を容易に得ることができる。

【0024】YAG焼結体用粉末と分散媒との混合は、例えば、超音波分散機、ボールミルおよび媒体攪拌ミルのような市販の装置を使って行うことができる。混合では、分散媒へ有機バインダーや潤滑剤を添加して行うことが好ましい。有機バインダーや潤滑剤を使用することによって、スラリーをスリップキャストにより成形して得られる成形体の強度を高めることができる。また、スラリーの製造は、YAG焼結体用粉末を造粒して顆粒にした後、得られる顆粒と分散媒とを混合する方法で行うこともできる。

【0025】さらに、先に述べた方法で製造された粉末、顆粒またはスラリーを成形することにより、YAG焼結体の製造に好適な成形体を製造することができる。成形は、例えば、金型一軸プレス、静水圧プレス、スリップキャスト、押し出し成形および射出成形のような各種方法で行うことができ、プレス時の成形圧は、通常、0.1T/cm² (10MPa) 以上であり、また、成形装置の小型化を考えれば、2T/cm² (200MPa) 以下が適当である。

【0026】本発明ではまた、前述したYAG焼結体用粉末、顆粒またはスラリーからの成形品を1500℃～1850℃で焼結することにより、最終目的物であるYAG焼結体が製造される。焼結体の製造は、通常、YAG焼結体用粉末を金型一軸プレス、静水圧プレス、スリップキャスト、押し出し成形または射出成形した後、得られた成形体を電気炉やガス炉を用い、所定温度で保持する方法で行うことができる。焼結温度が1500℃未満であると、相対密度として98%以上の焼結密度を有するYAG焼結体を得ることが困難となる。一方、焼結温度が1850℃を超えると、YAG焼結体が異常粒成長を起こしやすくなり、相対密度として98%以上の焼結密度を有するYAG焼結体を得ることが困難となる。焼結は、空気雰囲気中、保持時間が30分以上12時間以内となる条件で行うことが好ましい。なお、YAG焼結体用粉末の成形と成形体の焼結を同一装置で行うことも

可能であり、この場合に使用できる装置として、例えば、ホットプレス装置や熱間静水圧プレス（HIPと呼ばれることがある。）装置がある。

【0027】

【発明の効果】以上詳述した様に、本発明のYAG焼結体用粉末の製造方法によれば、原料として α 型の酸化アルミニウムを用いることなく、かつ仮焼工程なしに、YAG焼結体の相対密度として98%を達成することができるYAG焼結体用粉末を容易に得ることができる。本発明のYAG焼結体用顆粒の製造方法によれば、粉塵の発生がなく、ハンドリング性に優れ、かつ大型のYAG焼結体部材を製造する場合にも容易に均質で緻密な焼結体とすることが可能な焼結体用途に適した顆粒を得ることができる。本発明のYAG焼結体用スラリーの製造方法によれば、複雑な形状の成形体、焼結体を容易に得ることが可能なスリップ成形に適したスラリーを得ることができる。本発明のYAG焼結体用成形体の製造方法によれば、YAG焼結体の相対密度として98%を達成することができる成形体を得ることができる。

【0028】また、本発明の焼結体の製造方法によれば、相対密度98%以上の焼結密度を有するYAG焼結体を容易に得ることができる。

【0029】

【実施例】以下、本発明を実施例によりさらに詳細に説明するが、実施例は本発明の一実施態様を示すものであり、これにより本発明が制約されるものではない。

実施例1

原料として、純度99.9重量%、平均粒子径4.7 μ mである酸化イットリウム21gとアルコキシド加水分解法により得られた純度99.99重量%、結晶構造が擬ペーナイト型である水酸化アルミニウム21gを内容積3Lの振動ミルに仕込み、衝撃値6Gで84分乾式混合して、YAG焼結体用粉末を得た。このときの水酸化アルミニウムと酸化イットリウムの混合物の組成は、イットリウムとアルミニウムの原子比で3/4.7であった。上で得られたYAG焼結体用粉末を成形圧0.3T/cm²（30MPa）の金型一軸プレス、次いで成形圧1.5T/cm²（150MPa）の静水圧プレスで成形した後、1680℃の空気雰囲気中で5時間焼結して、YAG焼結体を得た。このYAG焼結体は、焼結密度が4.45g/cm³であり、相対密度98%であった。

【0030】実施例2

原料として、純度99.9重量%、平均粒子径5.1 μ mである酸化イットリウム1.3kgとアルコキシド加水分解法による得られた純度99.99重量%、結晶構造が擬ペーナイト型である水酸化アルミニウム1.3kgを内容積50Lの振動ミルに仕込み、衝撃値6Gで3時間乾式混合して、YAG焼結体用粉末を得た。このときの酸化イットリウムと水酸化アルミニウムの混合物の

組成は、イットリウムとアルミニウムの原子比で3/5.15であった。上で得られたYAG焼結体用粉末0.5kg、水5.5kgおよび分散剤としてポリカルボン酸塩7.7gを湿式媒体攪拌ミルに入れ、攪拌してYAG焼結体用粉末を分散させ、スラリー化した後、有機バインダーとしてポリビニルアルコールをYAG焼結体用粉末に対し3重量%添加し、得られたスラリーをスプレー造粒機で噴霧して、YAG焼結体用顆粒を得た。得られたYAG焼結体用顆粒を成形圧0.3T/cm²（30MPa）の金型一軸プレス、次いで成形圧1.5T/cm²（150MPa）の静水圧プレスで成形した後、1680℃の空気雰囲気中で5時間焼結して、YAG焼結体を得た。このYAG焼結体は焼結密度が4.51g/cm³であり、相対密度99%であった。

【0031】比較例1

原料として、純度99.9重量%、平均粒子径4.7 μ mである酸化イットリウム32gと純度99.99重量%、結晶構造が α 型である酸化アルミニウム24gを内容積3Lの振動ミルに仕込み、衝撃値6Gで84分乾式混合してYAG焼結体用粉末を得た。このときの酸化イットリウムと酸化アルミニウムの混合物中の組成は、イットリウムとアルミニウムの原子比で3/5であった。上で得られたYAG焼結体用粉末を成形圧0.3T/cm²（30MPa）の金型一軸プレス、次いで成形圧1.5T/cm²（150MPa）の静水圧プレスで成形した後、1680℃の空気雰囲気中で5時間焼結して、YAG焼結体を得た。このYAG焼結体は焼結密度が4.28g/cm³であり、相対密度94%であった。

【0032】比較例2

原料として、純度99.9重量%、平均粒子径4.7 μ mである酸化イットリウム1.3kg、純度99.99重量%、結晶構造が α 型である酸化アルミニウム1kgおよび水1.3kgを湿式媒体攪拌ミルに入れ、分散させてスラリー化した後、有機バインダーとしてポリビニルアルコールを酸化アルミニウムと酸化イットリウムとの合計に対し3重量%添加し、得られたスラリーをスプレー造粒機で噴霧して、YAG焼結体用顆粒を得た。このときの酸化イットリウムと酸化アルミニウムの混合物中の組成は、イットリウムとアルミニウムの原子比で3/5であった。得られたYAG焼結体用顆粒を成形圧0.3T/cm²（30MPa）の金型一軸プレス、次いで成形圧1.5T/cm²（150MPa）の静水圧プレスで成形した後、1680℃の空気雰囲気中で5時間焼結して、YAG焼結体を得た。このYAG焼結体は焼結密度が3.40g/cm³であり、相対密度75%であった。

【0033】比較例3

原料として、純度99.9重量%、平均粒子径4.7 μ mである酸化イットリウム21gとアルコキシド加水分解法により得られた純度99.99重量%、結晶構造が

ペーマイト型である水酸化アルミニウム21gを内容積3Lの転動ミルに仕込み、衝撃値1Gで24時間乾式混合して、YAG焼結体用粉末を得た。このときの酸化イットリウムと酸化アルミニウムの混合物中の組成は、イットリウムとアルミニウムの原子比で3/4.7であった。上で得られたYAG焼結体用粉末を成形圧0.3T

/cm²(30MPa)の金型一軸プレス、次いで成形圧1.5T/cm²(150MPa)の静水圧プレスで成形した後、1680℃の空気雰囲気中で5時間焼結して、YAG焼結体を得た。このYAG焼結体は焼結密度が4.13g/cm³であり、相対密度91%であった。

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.